UNIVERSITÉ de CAEN/BASSE-NORMANDIE

U.F.R. : Sciences

ÉCOLE DOCTORALE S.I.M.E.M.

(Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux)

THÈSE

présentée par

Mme Marie-Laure GIACRI-MAUBORGNE

et soutenue

le 18 novembre 2005

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Constituants élémentaires (TH202)

(Arrêté du 25 avril 2002)

Titre : Création d'une bibliothèque d'activation photonucléaire et mesures de spectres d'émission de neutrons retardés

$\infty\infty\infty$

MEMBRES du JURY

Prof. Bernard TAMAIN (directeur de thèse)
Dr Jean-Luc SIDA (rapporteur)
Dr Gérard BARREAU (rapporteur)
Dr Laurent TASSAN GOT (examinateur)
Dr Mark CHADWICK (examinateur)
Dr Danas RIDIKAS (responsable CEA)
Dr Arjan KONING (invité)
Dr Jean-Christophe SUBLET (invité)

Chapitre 2

Les codes de calcul

Dans le cadre du travail présenté ici, il est indispensable de pouvoir calculer des sections efficaces photonucléaires et des distributions de produits de photofission pour de nombreux noyaux. Ce type de données expérimentales est effectivement rare pour les réactions qui nous intéressent. Nous avons utilisé trois codes différents qui nous ont permis de calculer ou d'évaluer les données manquantes. Il s'agit des codes HMS-ALICE [Bla96], GNASH [You96] et ABLA [Ben98, Jun98]. HMS-ALICE et GNASH ont été utilisés pour le calcul de sections efficaces photonucléaires, HMS-ALICE et ABLA pour le calcul des distributions de produits de photofission.

Afin de préparer nos expériences, des simulations préliminaires sont par ailleurs nécessaires. Nous avons utilisé MCNPX [Wat02] pour le calcul de transport et CINDER'90 [Wil99] pour le calcul d'activation.

Afin d'étudier en détail l'émission de neutrons retardés, un programme a été développé pour prédire les spectres en temps d'émission de neutrons retardés à partir d'une distribution de produits de fission individuelle ou cumulative.

Ces codes seront présentés à tour de rôle dans les sections suivantes.

2.1 Codes de calcul de sections efficaces et de distribution de produits de fission

Il existe deux types de codes de calcul de sections efficaces. Les codes à caractère prédictif permettent d'obtenir des valeurs de sections efficaces pour des noyaux sur lesquels aucune mesure n'existe. Les paramètres de ces codes sont ajustés globalement. Les codes d'évaluation, quant à eux, permettent d'obtenir des informations supplémentaires comme les distributions en angle et en énergie à partir de mesures expérimentales de sections efficaces. Les paramètres sont ajustés pour chaque noyau afin de reproduire au mieux les résultats expérimentaux.

Les codes de calcul de sections efficaces sont tous basés sur le même schéma de calcul :

- absorption de la particule incidente
- répartition de l'énergie de la particule incidente sous forme d'excitation du noyau et émission de particules
- désexcitation du noyau par émission de particules et/ou fission

Ce schéma de calcul ainsi que les codes HMS-ALICE, GNASH et ABLA seront présentés plus en détail dans la suite de cette section.

2.1.1 Principe du calcul de sections efficaces de réactions

La section efficace d'absorption est une donnée essentielle pour le calcul de sections efficaces à l'aide de modèles nucléaires. Elle peut, soit être calculée directement par un modèle théorique, soit être donnée comme paramètre d'entrée à partir de données expérimentales. La plupart des modèles déterminent quelle est la probabilité relative d'avoir telle ou telle réaction en fonction de l'énergie d'excitation. La section efficace d'absorption permet alors de normaliser les résultats obtenus, c'est à dire de calculer la valeur absolue des sections efficaces des différentes réactions.

Pour ce type de calcul, deux modèles de réactions successifs sont pris en considération : le modèle de *prééquilibre* [Gri66, Bla71] et le modèle d'*évaporation* [Wei37, Wei40, Hau52]. Le prééquilibre décrit les interactions nucléon-nucléon à l'intérieur du noyau suite à l'interaction avec une particule incidente et ce jusqu'à l'équilibre thermique du noyau. Des nucléons peuvent être émis pendant la phase de prééquilibre.

Il existe au moins deux versions du modèle de prééquilibre, le *modèle de l'exciton* [Gri66] et le *modèle hybride* [Bla71], qui dérive toutefois du modèle de l'exciton. Toutes deux décrivent une succession d'états caractérisée par le nombre d'excitons n. On part d'un niveau initial n_0 pour arriver à l'état $\overline{n}$ pour l'équilibre par une série d'interactions à deux corps. À chaque étape le noyau peut émettre une particule ou décroître dans un état plus complexe. Pour les réactions photonucléaires, l'état initial est à deux particules et un trou soit $n_0 = 2p1h$ [Bla83]. Le prééquilibre est atteint lorsqu'il n'y a plus d'interaction à deux corps possible.

Une fois le prééquilibre atteint, un modèle d'évaporation est employé. Il peut être décrit par la théorie de Weisskopf-Ewing [Wei40] ou par la théorie d'Hauser-Feshbach [Hau52] qui tient compte de la conservation du spin et de la parité. L'évaporation décrit la probabilité associée aux différentes voies employées par le noyau pour revenir à l'équilibre. Dans le cas des actinides, il faut ajouter un modèle additionnel qui décrit la compétition entre la fission et l'évaporation.

2.1.2 HMS-ALICE

HMS-ALICE [Bla05] est un code de calcul de sections efficaces à caractère prédictif. Il est toujours en cours de développement à Los Alamos. Son utilisation est simple grâce au petit nombre de paramètres libres. Il demande en entrée la nature du projectile – neutron, proton ou photon – son énergie qui doit être comprise entre 100 keV et le seuil de création de pion et la nature de la cible qui doit être plus lourde que le béryllium-9. Il permet d'effectuer rapidement de nombreux calculs.

Ce code utilise le modèle hybride pour le calcul du prééquilibre et la théorie de Weisskopf-Ewing pour le calcul de l'évaporation. La probabilité de fission est décrite par le modèle de Bohr et Wheeler [Boh39].

HMS-ALICE a déjà été utilisé pour calculer des réactions photonucléaires mais juste au delà de la zone de GDR, entre 25 et 132 MeV [Bla83]. Les sections efficaces de production

de photoneutrons et la multiplicité moyenne sont bien reproduites pour l'oxygène-16, l'étain, le cérium, le tantale et le plomb. Si les prédictions de HMS-ALICE sont parfois sujettes à caution, dans le cas des réactions photonucléaires les résultats semblent plutôt bons.

Dans sa dernière version, HMS-ALICE permet également de calculer les distributions de produits de fission à l'aide du modèle décrit par Mashnik et Gudima [Mas02] et utilisé dans CEM2k [Mas00]. Cette capacité n'a jusqu'à présent jamais été testée ni en fission induite par neutron, ni en photofission.

2.1.3 GNASH

Selon Oblozinsky [Obl02], GNASH est le meilleur code d'évaluation qui possède la possibilité d'émettre plusieurs particules lors du prééquilibre et de l'émission statistique de particules à l'équilibre. À la différence de HMS-ALICE de nombreux paramètres peuvent être ajustés afin de reproduire les résultats des sections efficaces expérimentales. GNASH est un code destiné à l'évaluation de données et non un code à caractère prédictif comme HMS-ALICE.

GNASH a été largement utilisé par le laboratoire de Los Alamos qui l'a développé pour évaluer des sections efficaces de réactions induites par neutron. Plus récemment, il a été modifié et utilisé lors de l'estimation de sections efficaces photonucléaires de douze isotopes [Cha03b] pour le "*Handbook on photonuclear data for applications*" [IAE00]. Le plus lourd des isotopes étudiés est le plomb. Les actinides et la photofission n'ont donc pas été pris en compte lors de cette étude.

De nombreux fichiers d'entrée sont requis, en particulier ceux contenant les coefficients de transmission et les niveaux d'excitation de chaque noyau étudié. Les fichiers d'entrée sont longs à produire mais ils ne dépendent que du noyau cible. Pour les réactions photonucléaires, il est donc possible d'utiliser les fichiers produits lors de l'évaluation de sections efficaces de réactions induites par neutron.

GNASH utilise le modèle de l'exciton puis la théorie d'Hauser-Feshbach. Les modèles utilisés dans GNASH ainsi que son utilisation sont décrits en détail dans le manuel d'utilisation [You96].

Dans le cadre de cette thèse, GNASH est utilisé pour évaluer des sections efficaces photonucléaires sur des actinides. La première étape consiste à lui fournir une section efficace de photoabsorption. Elle n'est pas obligatoire mais cela permet d'avoir des résultats plus précis que si elle est calculée par GNASH. Les fichiers d'entrée utilisés sont les mêmes que pour les réactions induites par neutron après quelques modifications mineures : la voie d'absorption d'un neutron est supprimée et l'on précise que la particule incidente n'est plus un neutron mais un photon. Après un premier calcul utilisant ces fichiers, il est nécessaire de réitérer les calculs afin d'ajuster au mieux les paramètres pour reproduire les données.

La plus grosse partie du travail consiste enfin à ajuster les différents paramètres afin de reproduire au mieux les données expérimentales. Nous avons modifié essentiellement les paramètres des barrières de fission pour les actinides. En utilisant une méthode dichotomique, nous avons pu ajuster au mieux les paramètres des barrières de fission afin de reproduire les données expérimentales.

2.1.4 ABLA

ABLA [Jun98] est un code qui décrit la désexcitation d'un noyau composé par émission de particules légères ou par fission. Cette désexcitation est décrite par la théorie de Weisskopf-Ewing. Le code ABLA est connu pour donner de bons résultats pour la description du processus de désexcitation suite à la spallation, où le noyau perd son énergie par évaporation et/ou fission. La désexcitation est basée sur un modèle statistique où la fission est en compétition directe avec l'émission de particules. Le code donne donc les sections efficaces d'émission de neutron (et de proton), celles de fission mais aussi les distributions de produits de fission à l'aide du modèle semi-empirique PROFI [Ben98]. La fission multichance est elle aussi prise en compte. La fission est traitée par la méthode de Bohr et Wheeler.

On commence par décrire l'absorption du photon et l'excitation du noyau. Le noyau est produit directement à l'équilibre thermique. Ensuite, la désexcitation du noyau est calculée. Lors des calculs avec ABLA, le prééquilibre est négligé.

Ce code est utilisé, dans le cadre de cette thèse, pour calculer les distributions des produits de fission. Lors de ces calculs, les résultats ont été jugés suffisamment bons sans avoir à rajouter le prééquilibre.

2.2 Codes de simulation

Avant de lancer une expérience, il est souvent nécessaire de faire de nombreuses simulations. C'est en particulier le cas lorsque l'on utilise des faisceaux de Bremsstrahlung. Ils sont difficiles à mesurer directement et ne peuvent pas être déterminés par un calcul simple si la cible employée est trop épaisse [Sch51, Ber70]. La simulation des réactions photonucléaires est donc indispensable pour nos études. Nous avons choisi d'utiliser MCNPX car il intègre les réactions photonucléaires. Il est en outre basé sur le code MCNP qui est très largement utilisé en physique nucléaire.

En ce qui concerne les calculs d'activation, nous avons choisi CINDER'90 car il s'agit d'un code multigroupe, donc plus précis que les codes monogroupes. De plus, après d'utiles discussions avec Bill Wilson (l'auteur du code), nous avons conclu que CINDER'90 pouvait facilement être modifié afin d'intégrer une bibliothèque d'activation photonucléaire.

2.2.1 MCNPX

Il s'agit d'un code de transport dérivé de MCNP [Bri00] basé sur du calcul Monte Carlo. Toutes les fonctions de MCNP sont présentes dans MCNPX. Par contre, sa fonctionnalité est étendue aux hautes énergies, supérieures à 20 MeV, grâce à l'utilisation de LAHET [Pra01] et de bibliothèques de données jusqu'à 150 MeV. Il peut être utilisé avec de nombreux types de particules (neutrons, protons, photons, alpha, ...). Il est nécessaire de lui fournir en entrée une description géométrique en trois dimensions de l'environnement où sont transportées les particules. Il décrit l'historique de chaque particule incidente et des particules créées au cours du transport. Ceci permet d'avoir une description complète des flux de particules dans l'environnement. Plus de détails sont disponibles dans le manuel d'utilisation [Wat02].

Un effort pour développer les bibliothèques de sections efficaces photonucléaires a été fait par l'IAEA et cela a abouti au "*Handbook on photonuclear data for applications*" [IAE00] et à la production d'une bibliothèque de sections efficaces pour 164 isotopes. Grâce à cette bibliothèque les réactions photonucléaires ont pu être ajoutées aux capacités de MCNPX pour ces isotopes [Whi03].

Nous avons essentiellement utilisé ce code lors de la phase de préparation de nos expériences de mesure de neutrons retardés et lors de l'analyse des résultats.

2.2.2 CINDER'90

CINDER'90 est un code de calcul d'activation multigroupe. Il est utilisé pour calculer l'activation induite par des neutrons ayant une énergie inférieure à 25 MeV.

Nous nous sommes inspirés de la structure de sa bibliothèque d'activation multigroupe afin de créer la nôtre.

Description

CINDER'90 décrit les concentrations temporelles des nucléides détruits et/ou créés dans des matériaux soumis à un flux de neutrons. Ce code d'évolution qui fournit l'inventaire des éléments à l'aide d'une bibliothèque de sections efficaces calculées pour 63 groupes d'énergie [Wil95, Wil99]. Il utilise pour cela une bibliothèque basée sur des données nucléaires afin de déterminer tous les chemins possibles et ainsi calculer les concentrations partielles et l'activité associée à chaque nucléide.

CINDER'90 a besoin en entrée, de la description du flux de particules et de la probabilité de production de nucléides pour des réactions hors du domaine défini dans ses bibliothèques. Le flux de particules est décrit à l'aide d'autres codes comme MCNP. Des programmes sont nécessaires pour coupler ces codes entre eux [Wil99]. Pour chaque étape en temps décrite dans un fichier d'entrée, CINDER'90 calcule uniquement la densité atomique, la densité d'activité, la densité de neutrons retardés et les évènements de fission induite par neutrons.

Structure de la bibliothèque d'activation de CINDER'90

La structure de la bibliothèque d'activation de CINDER'90 nous intéresse tout particulièrement puisque nous souhaitons créer une bibliothèque d'activation. Nous allons donc l'étudier ici en détail. Pour chaque noyau, la bibliothèque contient :

- la durée de vie
- les énergies, en MeV, des particules émises par la décroissance naturelle ; en particulier le spectre de décroissance gamma en 25 groupes
- les décroissances naturelles et le taux d'embranchement pour les noyaux radioactifs
- les différentes distributions des éventuels produits de fission en fonction de l'énergie des neutrons
- le nombre de produits de réaction avec pour chacun :
  - le produit de réaction
  - la section efficace en 63 groupes pour des énergies allant jusqu'à 25 MeV

La valeur de la section efficace pour un groupe est la moyenne de la section efficace pondérée par un flux de neutrons. Suivant l'énergie du groupe, on choisira un flux typique de réacteur thermique ou rapide. Les sections efficaces utilisées dans cette bibliothèque proviennent de différentes sources (EAF, ENDF, JEFF).

La bibliothèque contient 3400 noyaux. L'activation est calculée pour 736 de ces noyaux. Les noyaux dont les sections efficaces d'activation sont négligées, sont des noyaux à courte période radioactive. Pour ces noyaux, seule la décroissance radioactive est prise en compte lors de calcul d'activation. Cela permet également d'alléger les calculs.

Si les matériaux activés contiennent des noyaux fissiles, il est nécessaire de disposer des distributions des produits de fission pour calculer l'activité induite. La bibliothèque contient donc quatre types de distributions de produits de fission, en fonction de l'énergie des neutrons incidents, pour une trentaine d'actinides : distribution suite à une fission induite par un neutron thermique (n_{th}), rapide (n_f) ou de 14 MeV (n_h) ou par fission spontanée. Ces différentes distributions sont listées dans le tableau 2.1.

Th-227 + n_{th}	Th-229 + n_{th}	Th-232 + n_f	Th-232 + n_h
Pa-231 + n_f	U-232 + n_{th}	U-233 + n_{th}	U-233 + n_f
U-233+ n_h	U-234 + n_f	U-234 + n_h	U-235 + n_{th}
U-235 + n_f	U-235 + n_h	U-236 + n_f	U-236 + n_h
U-237 + n_{th}	U-237 + n_f	U-237 + n_h	U-238 + n_f
Np-237 + n_{th}	Np-237 + n_f	Np-237 + n_h	Np-238 + n_f
Pu-238 + n_f	Pu-239 + n_{th}	Pu-239 + n_f	Pu-239 + n_h
Pu-240 + n_{th}	Pu-240 + n_f	Pu-240 + n_h	Pu-241 + n_{th}
Pu-241 + n_f	Pu-242 + n_{th}	Pu-242 + n_f	Pu-242 + n_{th}
Am-241 + n_{th}	Am-241 + n_f	Am-241 + n_h	Am-242*
Am-243 + n_f	Cm-242 + n_f	Cm-243 + n_{th}	Cm-243 + n_h
Cm-244	Cm-244 + n_f	Cm-245 + n_{th}	Cm-246
Cm-246 + n_f	Cm-248	Cm-248 + n_f	Cm-249 + n_{th}
Cm-250	Cm-251 + n_{th}	Cm-252	Es-253
Es-253 + n_{th}	Fm-254	Fm-255 + n_{th}	Fm-256

TAB. 2.1 – Liste des noyaux pour lesquels des distributions de produits de fission sont disponibles dans la bibliothèque d'activation de CINDER'90

Un des objectifs de cette thèse est de développer une bibliothèque d'activation photonucléaire. Celle-ci pourrait, entre autres, permettre d'étendre les calculs d'évolution de CINDER'90 à des flux de photons. Nous avons donc choisi d'utiliser la même structure que la bibliothèque de CINDER'90 afin de faciliter son intégration dans le code. La création de la bibliothèque d'activation photonucléaire est présentée dans le chapitre 3.

2.3 Code de calcul de spectres d'émission de neutrons retardés à partir de distributions de produits de fission

En connaissant les caractéristiques des produits de fission – temps de vie, taux d'embranchement et taux de production – il est *a priori* possible de calculer le spectre d'émission de neutrons retardés. C'est ce que fait le code présenté ici.

2.3.1 Présentation du calcul

Le schéma de principe du calcul est donné sur la figure 2.1. Une distribution individuelle de produits de fission est nécessaire en entrée sous la forme $Z\ A\ Y_{(Z,A)}$, où $Y_{(Z,A)}$ est le taux de production du noyau (Z,A).

Dans le cas des résultats fournis par ABLA, tous les isotopes sont produits dans leur état fondamental. Pourtant, lors de la fission, certains sont produits dans un état excité. Certains noyaux dans leur état isomérique sont des précurseurs de neutrons retardés comme, par exemple, le yttrium-98. L'isomère n'appartient pas forcément au même groupe que l'état fondamental et il n'a pas la même probabilité d'émission de neutron. Il est nécessaire de connaître le rapport de production isomérique afin d'en tenir compte lors du calcul de spectres de neutrons retardés.

Les rapports de production isomérique sont contenus dans le fichier *bib_isomere.dat*. Ce rapport varie en fonction du projectile et de son énergie. Dans cette version du calcul, nous avons choisi d'utiliser ceux de la fission induite par neutron rapide sur l'uranium-238 issu de l'étude systématique d'England [Eng94]. *JCD2splprods.x* regarde si chaque produit de fission peut exister à l'état isomérique et distribue la probabilité de production entre l'état fondamental et isomérique selon le rapport de production. Ces distributions sont normalisées à 200% et converties en un fichier *splprods* lisible par CINDER'90. Ce fichier est considéré comme une source de produits de réaction supplémentaire.

On fait évoluer les distributions individuelles à l'aide de CINDER'90 jusqu'aux distributions cumulatives. Elles sont inscrites dans le fichier *results*.

Ensuite *g6.x* extrait les précurseurs parmi les produits de fission, multiplie la probabilité de production par le taux d'embranchement de décroissance par émission de neutrons retardés. La liste des noyaux précurseurs est contenue dans le fichier *prec.txt*. Elle contient, pour chaque précurseur, son temps de demi-vie et le taux d'embranchement pour l'émission de neutrons retardés en pourcent. On obtient ainsi les temps de demi-vie et la contribution de chaque groupe.

2.3.2 Validation de *g6.x*

Nous avons validé ce code par des calculs de spectres d'émission de neutrons retardés dans le cas de la fission induite par neutron. Pour ces tests, les distributions de produits de fission induites par neutron choisies sont extraites de l'étude systématique d'England [Eng94]. Elles contiennent aussi les distributions isomériques donc le fichier *bib_isomere.dat* n'est pas utilisé ici.

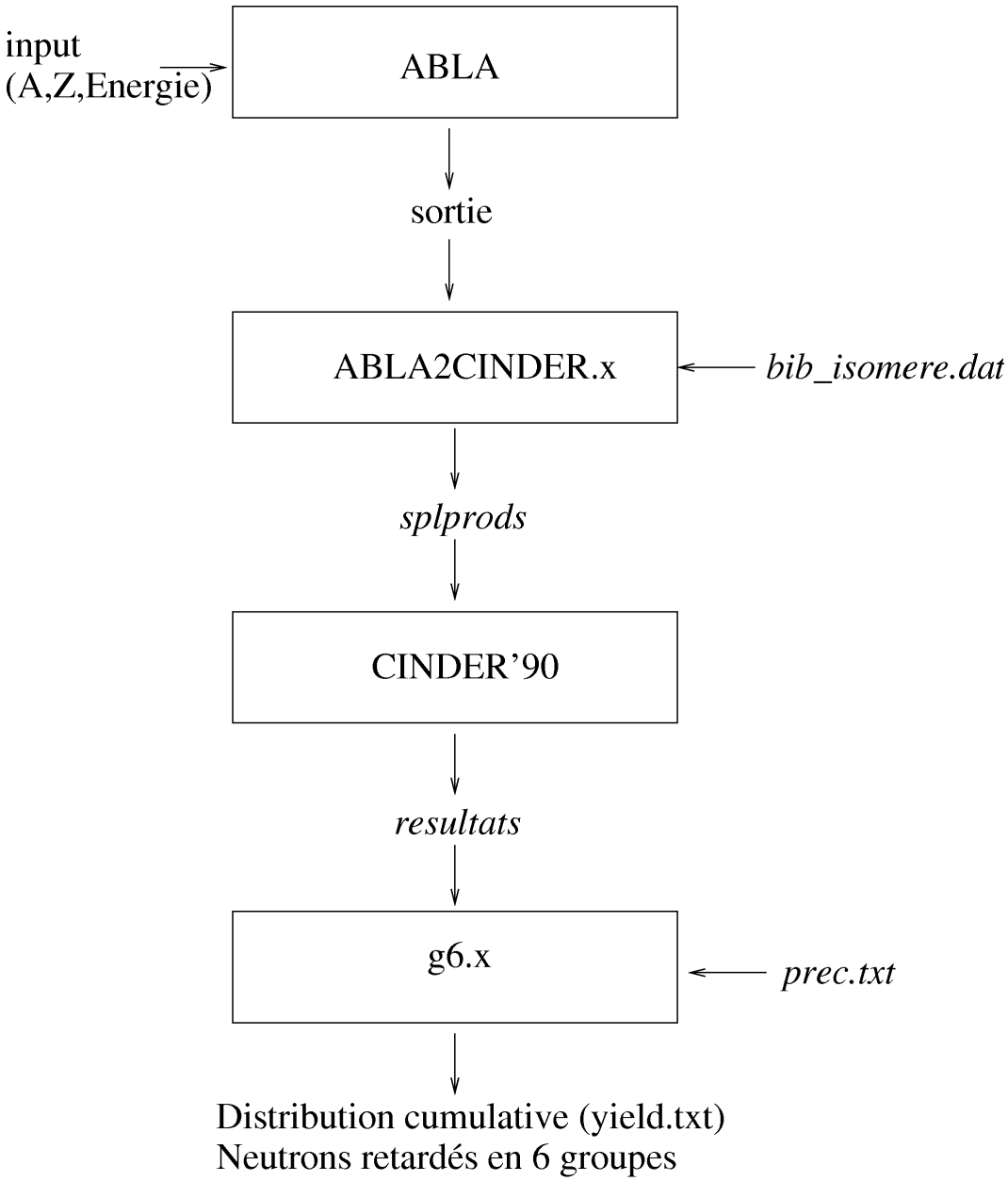

FIG. 2.1 – Principe du calcul des six groupes de neutrons retardés

Plusieurs listes de noyaux précurseurs [Eng94, Tul00, Pfe01] ont été testées. Dans un souci de cohérence, nous avons choisi de garder les listes intégralement. Les données d'England donnent les meilleurs résultats, ce sont donc celles que nous avons retenues pour le calcul de spectre de neutrons retardés. Elles sont présentés en annexe A.

Un exemple de résultat dans la cas de la fission de l'uranium-235 induite par des neutrons thermiques est présentée dans la tableau 2.2. D'autres exemples sont fournis dans l'annexe B.

$n_{th}+^{235}U$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	55.72±1.28	55.6	-	0.052±0.005	0.054	+3.8%
2	22.72±0.71	21.48	-5.5%	0.346±0.018	0.343	-0.9%
3	6.22±0.23	5.16	-17.0%	0.310±0.036	0.300	-3.2%
4	2.30±0.09	1.93	-16.1%	0.624±0.026	0.678	+8.7%
5	**0.610±0.083**	**0.478**	**-21.6%**	0.182±0.015	0.177	-2.7%
6	0.230±0.025	0.214	-7.0%	**0.066±0.008**	**0.180**	**+172%**
			Total	1.58±0.05	1.73	+9.5%

TAB. 2.2 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur l'uranium-235 (en gras les écarts supérieurs à 20%)

Les écarts supérieurs à 20% et supérieurs aux barres d'erreur expérimentales sont indiqués en gras. Ces écarts ont deux origines possibles : une méconnaissance des caractéristiques des précurseurs (temps de vie, taux d'embranchement) ou une méconnaissance des distributions des produits de fission. La plupart des écarts observés concernent les groupes 5 et 6. Ceci est certainement lié à la méconnaissance des données pour les précurseurs à vie courte.

Le nombre moyen de neutrons retardés émis par fission est reproduit par le code avec une erreur d'environ 10%. Si les temps de vie des différents groupes sont reproduits de manière satisfaisante, les écarts sont plus grands pour la contribution individuelle de chaque groupe. Les erreurs obtenues pour les différents groupes se compensent au niveau du nombre total.

Les résultats obtenus sont néanmoins bons. Ce code va donc nous permettre de tester partiellement les distributions des produits de fission dans le cas de la photofission.

2.4 Synthèse

À l'aide de HMS-ALICE et de GNASH, il est possible de calculer des sections efficaces photonucléaires. C'est le travail que nous présentons à la section 3.1. Il semble toutefois que HMS-ALICE, avec son jeu de paramètres globaux, soit plus intéressant à utiliser lors du calcul de sections efficaces photonucléaires pour un grand nombre de noyaux.

Les distributions de produits de fission peuvent être calculées à l'aide de HMS-ALICE et ABLA. Les résultats obtenus pour ces différents codes sont présentés à la section 3.2.

Aucun des deux codes n'ayant été testé auparavant par rapport à des données expérimentales dans le cadre de la photofission, il est difficile d'en choisir un *a priori*.

Pour nos simulations, nous avons choisi d'utiliser les codes MCNPX et CINDER'90 qui nous paraissent les mieux adaptés pour répondre à nos besoins.

Nous avons également développé une procédure de prédiction des spectres d'émission de neutrons retardés à partir des distributions des produits de fission. Les premiers tests effectués sur des distributions issues de la fission induites par neutron sont encourageants. Ils montrent que des améliorations restent cependant nécessaires sur les données des précurseurs à vie très courte ($T_{1/2} < 1$ s), en particulier pour les valeurs des taux d'embranchement.